

明 細 書

ポリエステル樹脂組成物ならびに光学材料

技術分野

本発明は、光学材料に好適に用いることのできるポリエステル、ポリカーボネート樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、複屈折が小さく、透明性、機械的強度、寸法安定性に優れ、屈折率とアッペ数のバランスを良好に有し、耐熱性が高く、流動性が良好で、カメラレンズ、眼鏡レンズ、光ディスク、光ファイバー、光学シートなどの光学材料に好適に用いることができる樹脂組成物に関する。

背景技術

従来、透明で機械特性に優れている樹脂は光学材料として多く用いられている。例えばポリメチルメタクリレート（以下PMMAと略する）やポリカーボネート（以下PCと略する）、アモルファスポリオレフィン（以下APOと略する）などが、コンパクトディスク、レーザーディスク、プロジェクションレンズ、 $f-\theta$ レンズ、撮影系レンズ、ファインダー系レンズ、ピックアップレンズ、デジタルカメラレンズなどの光学材料として、また、自動車の透明部品、反射材料等に使用されている。PMMAは透明性に優れ、光学的異方性も小さいのでよく使われるが、吸湿性が高く、成形後、反り等の変形が起り易く形態安定性が悪い。

一方PCは耐熱性が高く、透明性に優れているが、流動性が悪く、成形品の複屈折が大きくなる等の問題があり、光学材料として十分に満足されたものとはいえない。また、APOは耐熱性が高く、透明性に優れているが、流動性が悪く、成形時に着色しやすい。また、蒸着膜やハードコート膜などを接着するには、プラズマ処理などの前工程を経ないと、十分な接着性が得られず、光学材料として十分に満足されたものとはいえない。

さらに近年レーザー光を用いて音声、画像、文字等の情報を記録、再生する光ディスク、デジタルビデオディスクが急速に開発され、より高性能な光学特性を有する基板材料が要望されている。デジタルカメラ、携帯電話に使用される小型カメラの撮影系のレンズは、小型化が進み、さらには、CCDやCMOSなどの画像認識装置小型化、高精細化の方向から、より光学的異方性の少ない樹脂材料が要望されている。

また、より厳しい環境下での使用での耐久性が求められている。例えば、従来は温度65℃、湿度80%で、透明性が損なわれないことが条件であったが、最近では温度85℃、湿度90%で、透明性が損なわれず、レンズ面の表面の変形が小さいことが求められている。

ポリエステル重合体やポリエステル共重合体としては、芳香族ジカルボン酸と9,9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン類を用いた重合体が光学材料として提案されている（たとえば、特許第2843215号公報、特許第2843214号公報参照。）。脂環族ジカルボン酸と9,9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン類を用いた重合体が提案されている（たとえば、特許第3331121号公報、特開平11-60706号公報、特開2000-31936号公報参照。）。これらのポリエステル共重合体は屈折率が高く、複屈折率が小さく、耐熱性に優れ、透明であることから、光学材料として有用であるが、高価な原料を使用したり、耐熱性が不足したりして、必ずしも満足できるものではない。

ポリエステル重合体とPCとをブレンドした樹脂組成物としては、例えば、芳香族ジカルボン酸からなるポリエステルと芳香族ジヒドロキシ化合物からなるポリカーボネートのブレンドした樹脂組成物が提案されている（特開2002-265771号公報）が、カメラレンズや眼鏡レンズといった光学レンズや、光学フィルムといった光学用途への適用に関する記載はない。

芳香族ジカルボン酸と9,9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン類を用いた重合体とPCとのブレンドした樹脂組成物が光学材料として提案されている（特許第3023279号公報参照。）。耐熱性が高く、屈折率が高く、複屈

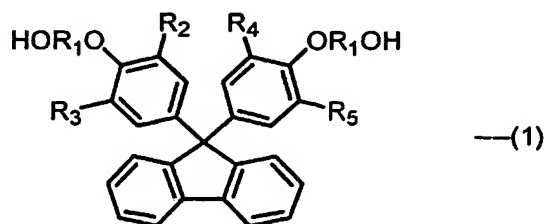
折率が小さく光学材料として有用であるが、耐熱性を維持しつつ、温度 85℃、湿度 90% で、透明性が損なわれず、レンズ面の表面の変形が小さく、成形時の着色が小さく、屈折率とアッペ数のバランスがよく、複屈折率の小さい材料が望まれている。

発明の開示

本発明の目的は、上記問題点を解消し、複屈折が小さく、透明性、機械的強度、寸法安定性に優れ、屈折率とアッペ数のバランスを良好に有し、耐熱性が高く、流動性が良好で、カメラレンズ、眼鏡レンズ、光ディスク、光ファイバー、光学シートなどの光学材料に好適に用いるこのとができる樹脂を提供することにある。

本発明者は、上記課題を解決するため、種々研究を重ねた結果、ジカルボン酸化合物とジヒドロキシ化合物からなるポリエステル重合体であって、ジカルボン酸化合物が脂環族ジカルボン酸および／またはそのエステル形成性誘導体を含み、特定のジヒドロキシ化合物を含むポリエステル重合体とポリカーボネートとをブレンドしてなる樹脂組成物を用いることで課題を解決できることを見だし、本発明に到達した。

即ち本発明は、ジカルボン酸化合物とジヒドロキシ化合物からなるポリエステル重合体であって、ジカルボン酸化合物が脂環族ジカルボン酸および／またはそのエステル形成性誘導体を含み、ジヒドロキシ化合物が一般式 (1) で示される化合物を含むポリエステル重合体とポリカーボネートとをブレンドしてなる樹脂組成物であることを特徴とする。



(R₁ は炭素数 2 から 4 のアルキレン基、R₂、R₃、R₄、及び R₅ は水素または炭素数

1 から 4 のアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なっているもよい)

さらに、ジカルボン酸化合物とジヒドロキシ化合物からなるポリエステル重合体であって、ジカルボン酸化合物が脂環族ジカルボン酸および／またはそのエステル形成性誘導体を含み、ジヒドロキシ化合物が一般式 (1) で示される化合物を含むポリエステル重合体とポリカーボネートとを重量比 5 : 95 から 95 : 5 の範囲でブレンドしてなることが好ましい。

また、脂環族ジカルボン酸が、シクロヘキサンジカルボン酸、デカリンジカルボン酸、ノルボルナンジカルボン酸、アダマンタンジカルボン酸、またはトリシクロデセンジカルボン酸から選ばれる少なくとも 1 種の化合物であることが好ましい。

本発明により、複屈折が小さく、透明性、機械的強度、寸法安定性に優れ、耐熱性が高く、流動性が良好で、屈折率とアッペ数のバランスを良好に有し、成形性と光学特性のバランスのとれた材料が提供可能となり、カメラレンズ、眼鏡レンズ、光ディスク、光ファイバー、光学シートなどの光学材料に好適に用いるこのことが出来る樹脂を提供可能となる。

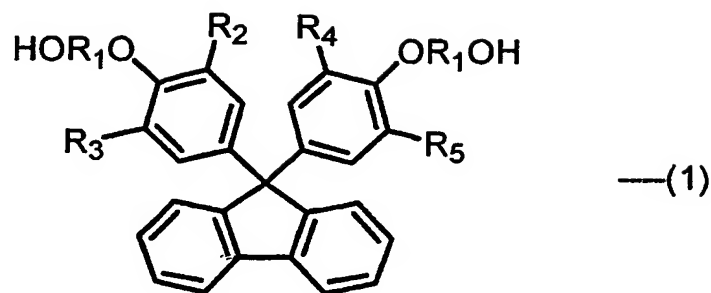
図面の簡単な説明

第 1 図は、実施例 1 の樹脂組成物の DSC 測定チャートである。

発明を実施するための最良の形態

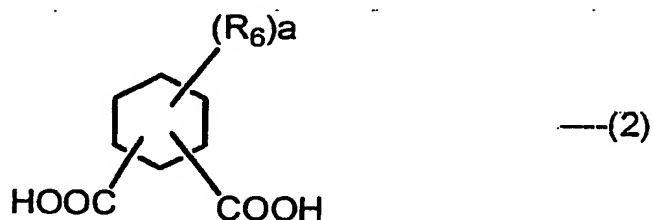
本発明を実施するための形態を説明する。

本発明のポリエステル樹脂組成物は、ジカルボン酸化合物とジヒドロキシ化合物からなるポリエステル重合体であって、ジカルボン酸化合物が脂環族ジカルボン酸および／またはそのエステル形成性誘導体を含み、ジヒドロキシ化合物が一般式 (1) で示される化合物を含むポリエステル重合体とポリカーボネートとをブレンドしてなる樹脂組成物である。

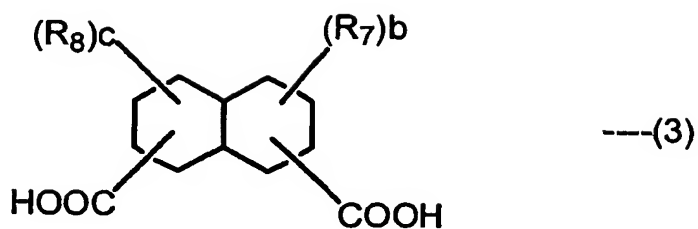


(R_1 は炭素数2から4のアルキレン基、 R_2 、 R_3 、 R_4 、及び R_5 は水素または炭素数1から4のアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい)

本発明のポリエステル重合体に供する脂環族ジカルボン酸としては、下記一般式(2)で表されるシクロヘキサンジカルボン酸等の単環式脂環族ジカルボン酸、または下記一般式(3)、(4)で表されるデカリンジカルボン酸、下記一般式(5)、(6)で表されるノルボルナンジカルボン酸、下記一般式(7)、(8)で表されるアダマンタンジカルボン酸、下記一般式(9)、(10)、(11)で表されるトリシクロデセンジカルボン酸等の多環式脂環族ジカルボン酸等が挙げられる。

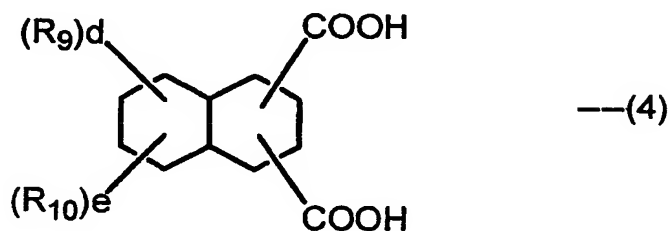


(R_6 は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。 a は1から3の自然数である。)



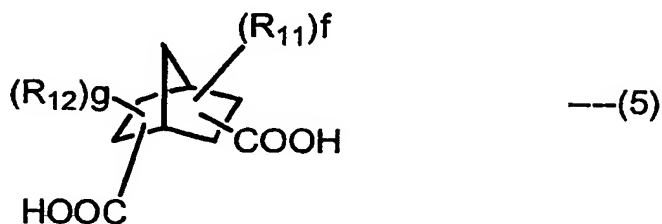
(R_7 及び、 R_8 は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。 b 、 c は1から7の自然数である。

)



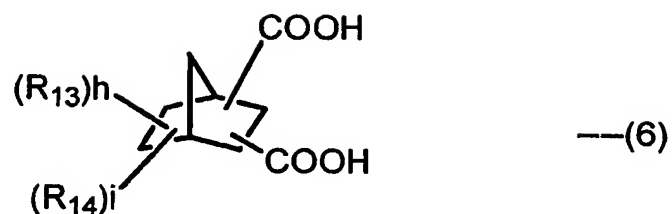
(R_9 及び、 R_{10} は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。 d 、 e は1から7の自然数である。

)

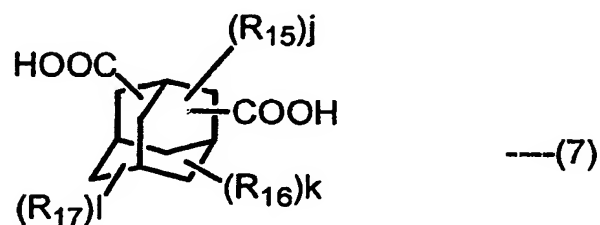


(R_{11} 及び、 R_{12} は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。 f 、 g は1から7の自然数である

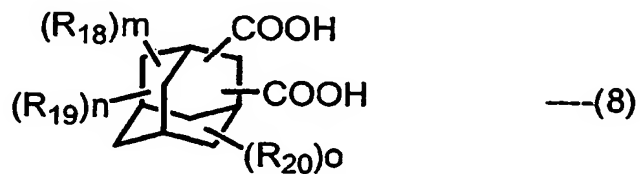
。)



(R₁₃及び、R₁₄は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。h、iは1から7の自然数である。)

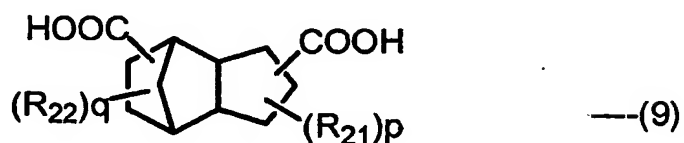


(R₁₅、R₁₆及び、R₁₇は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。j、kは1から8の自然数で、lは1から9の自然数である。)

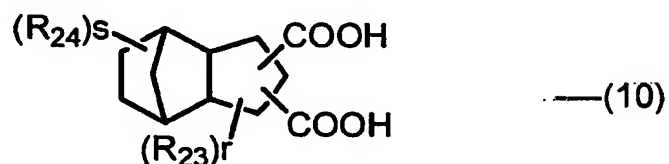


(R₁₈、R₁₉及び、R₂₀は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基

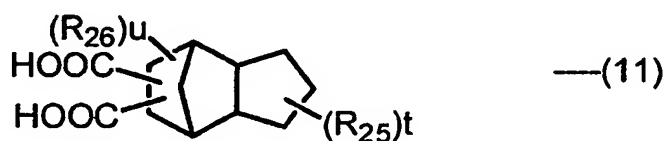
、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。m、nは1から8の自然数で、oは1から9の自然数である。)



(R_{21} 及び、 R_{22} は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。p、qは1から7の自然数である。)



(R_{23} 及び、 R_{24} は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。r、sは1から7の自然数である。)



(R_{25} 及び、 R_{26} は水素又は炭素数1から7までのアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい。 t 、 u は1から8の自然数である。)

これらの脂環族ジカルボン酸のエステル形成性誘導体としては、通常ポリエステルに用いられるジカルボン酸エステル形成性誘導体が挙げられ、例えばジメチルエステル、ジエチルエステル等のアルキルエステル等が挙げられる。

これらの脂環族ジカルボン酸またはそのエステル形成性誘導体は、それぞれ単独で用いても良いし、必要に応じて2種以上併用しても良い。

これら脂環族ジカルボン酸の中でも1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸、1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸ジメチルエステル、2, 6-デカリンジカルボン酸、2, 6-デカデカリンジカルボン酸ジメチルエステルが、合成し易さ、成形性、光学特性等の点で好ましいが、これに限定されるものではない。

1, 4-シクロジカルボン酸はトランス/シスの異性体があるが、その比率は特に限定されるものではない。トランス異性体の方が融点312℃程度と高く、シス異性体の融点150℃程度である。本発明のポリエステルの溶融重合法で重合する場合は、高温(230℃から300℃)で行う。その間に、トランス/シスの異性体の転移が起こり、最終的に得られる樹脂のトランス/シスの比率は、 $^1\text{H-NMR}$ で測定したモノマーでのトランス/シス比が90/10~10/90の場合、最終的に得られるトランス/シス比は50/50~70/30の範囲となる。

本発明において用いられる脂環族ジカルボン酸またはそのエステル形成性誘導体は、ジカルボン酸成分全体を100として1~100mol%の間で任意に含有させることができるが、他のジカルボン酸として脂肪族ジカルボン酸とともに用いる場合には、耐熱性をより高めるため、50mol%以下が好ましい。他のジカルボン酸として単環式芳香族ジカルボン酸を用いる場合には、複屈折率を低下させるため80mol%以下が好ましい。多環式芳香族ジカルボン酸、ビフェニルジカルボン酸とともに用いる場合には、複屈折率を低下させるため、各々50mol%以下が好ましい。

本発明において用いられる他の成分として用いられるジカルボン酸としては、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、メチルマロン酸、エチルマロン酸等の脂肪族ジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸等の単環式芳香族ジカルボン酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸、1, 8-ナフタレンジカルボン酸等のナフタレンジカルボン酸、アントラセンジカルボン酸、フェナントレンジカルボン酸等の多環式芳香族ジカルボン酸、2, 2'-ビフェニルジカルボン酸等のビフェニルジカルボン酸等が挙げられる。

本発明において、一般式(1)で表されるジヒドロキシ化合物としては、例えば、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-メチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジメチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-エチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジエチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-プロピルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジプロピルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-イソプロピルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジイソプロピルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-n-ブチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジ-n-ブチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-イソブチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジイソブチルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-(1-メチルプロピル)フェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ビス(1-メチルプロピル)フェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-フェニルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジフ

フェニルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3-ベンジルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-3, 5-ジベンジルフェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(3-ヒドロキシプロポキシ)フェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(4-ヒドロキシブトキシ)フェニル]フルオレン等が挙げられ、これらは単独でも2種類以上を組み合わせ使用しても良い。これらの中でも9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ-3メチル)フェニル]フルオレンが光学特性、成形性の面から最も好ましい。

9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレンは、例えば、9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンにエチレンオキサイド(以下、EOと略する)を付加して得られる。この際、フェノールの両水酸基にエチレンオキサイドが1分子ずつ付加した2EO付加体(9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン)の他に、さらに数分子過剰に付加した、3EO付加体、4EO付加体等の不純物が含まれる事がある。ポリエステル重合体の耐熱性を向上させるためには、2EO付加体の純度が95%以上で有ることが好ましく、さらに好ましくは97%以上である。

9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレンを得る別の方法としては、フルオレノンに直接フェノキシエタノールを付加させて得られる。この場合は、EOが過剰に付加した付加体は含まれにくく、より好適に用いることができる。

本発明のポリエステル重合体を溶融重合法のエステル交換法で製造するには、一般式(1)で表わされるジヒドロキシ化合物は、樹脂中のグリコール成分の10から95mol%であることが好ましい。95mol%以下の場合、溶融重合反応が進みやすく、重合時間が短いという利点がある。尚、95mol%より多い場合は、溶液重合法または界面重合法で製造することによって短時間で重合することができる。また、10mol%以上は、樹脂のガラス転移温度が高いという点で好ましい。

また、使用する原料の由来によっては、硫黄を含有する酸(例えば、硫酸、p-トル

エンスルホン酸など) があると、ジエチレングリコールが生成しやすくなる。ポリマー中のジエチレングリコールが6 mol %を超えると、耐熱性の指標であるガラス転移温度の低下や、屈折率の低下が大きくなり、ポリマーの特性の変化が大きくなり、工業的に安定した品質のポリマーを経済的に提供しにくくなる。

ジエチレングリコールの量は4 mol %以下が好ましく、3 mol %以下が特に好ましい。

本発明で用いるポリカーボネートとしては、とくに、芳香族ポリカーボネートが好適である。ポリカーボネートの重合方法は、酸結合剤の存在下にジヒドロキシ化合物とホスゲンとを反応させる方法（溶液重合法）およびジヒドロキシ化合物をカーボネートエステルとエステル交換反応させる方法（エステル交換法）が好ましく採用される。これらのうち、エステル交換法が有利である。エステル交換法は、その重合の形態や方式は特に制限されない。例えば、熔融重合法または固相重合法いずれも採用することができるが、熔融重合法が工業的に望ましい。

芳香族ジヒドロキシ化合物としては、具体的にはビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン、2, 2-ビス（4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル）プロパン、ビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-1-フェニルエタン、4, 4'-[1, 3-フェニレンビス（1-メチルエチリデン）] ビスフェノール、4, 4'-[1, 4-フェニレンビス（1-メチルエチリデン）] ビスフェノール、9, 9-ビス（4-ヒドロキシフェニル）フルオレン、9, 9-ビス（4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル）フルオレン、9, 9-ビス（4-ヒドロキシ-3, 5-ジメチルフェニル）フルオレンなどのビス（4-ヒドロキシアリール）アルカン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、1, 1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、4-[1-[3-(4-ヒドロキシフェニル)-4-メチルシクロヘキシル]-1-メチルエチル]-フェノール、4, 4'-[1-メチル-4-(1-メチルエチル)-1, 3-シクロヘキサンジイル] ビスフェノール、2, 2, 2', 2

’-テトラヒドロ-3, 3, 3’, 3’-テトラメチル-1, 1’-スピロビス-[1H-インデン]-6, 6’-ジオールなどのビス(ヒドロキシアリール)シクロアルカン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)エーテル、4, 4’-ジヒドロキシ-3, 3’-ジメチルフェニルエーテルなどのジヒドロキシアリールエーテル、4, 4’-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4, 4’-ジヒドロキシ-3, 3’-ジメチルジフェニルスルフィドなどのジヒドロキシジアリールスルフィド類、4, 4’-ジヒドロキシジフェニルスルホキシド、4, 4’-ジヒドロキシ-3, 3’-ジメチルジフェニルスルホキシドなどのジヒドロキシジアリールスルホキシド、4, 4’-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4, 4’-ジヒドロキシ-3, 3’-ジメチルジフェニルスルホン、などのジヒドロキシジアリールスルホン、4, 4’-ジヒドロキシジフェニル-3, 3’-イサチンなどのジヒドロキシジアリールイサチン類。3, 6-ジヒドロキシ-9, 9-ジメチルキサンテンなどのジヒドロキシジアリールキサンテン、レゾルシン、ヒドロキノン、2-tert-ブチルヒドロキノン、2-フェニルヒドロキノン、2-クミルヒドロキノン、4, 4-ジヒドロキシジフェニルなどのジヒドロキシベンゼン等が例示される。

中でも2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンがモノマーとしての安定性、更にはそれに含まれる不純物の量が少ないものの入手が容易である点、等より好ましいものとしてあげられる。

また、その他の芳香族ジヒドロキシ化合物として、例えばビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ブタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ペンタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)イソペンタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)ヘキサン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)イソヘキサン、4, 4’-ジヒドロキシトリフェニルメタン、4, 4’-ジヒドロキシテトラフェニルメタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4’-ヒドロキシ-3’, 5’-ジメチ

ルフェニル) プロパン、ジヒドロキシジフェニルエーテル、ジヒドロキシジフェニルスルホン、ジヒドロキシジフェニルスルフィドといった、ビスフェノール類及びハイドロキノン、レゾルシン、*o*-メチルレゾルシン、*o*-クミルレゾルシンといった二価のフェノール化合物から選択される一種または二種以上を用いても良い。

ポリカーボネートとしては、たとえば、2, 2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)プロパンをホスゲンとアルカリ水溶液-塩化メチレン系で界面重合させて得られる芳香族ポリカーボネートを用いるのが好適である。

また、本発明の樹脂組成物には、ポリエステル重合体(第一成分)とポリカーボネート(第二成分)とのエステル交換反応を抑制するためや成形時等における分子量の低下や色相の悪化を防止するために熱安定剤を配合することができる。

かかる熱安定剤としては、亜リン酸、リン酸、亜ホスホン酸、ホスホン酸およびこれらのエステル等が挙げられ、具体的には、トリフェニルホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、トリス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)ホスファイト、トリデシルホスファイト、トリオクチルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジデシルモノフェニルホスファイト、ジオクチルモノフェニルホスファイト、ジイソプロピルモノフェニルホスファイト、モノブチルジフェニルホスファイト、モノデシルジフェニルホスファイト、モノオクチルジフェニルホスファイト、ビス(2, 6-ジ-*tert*-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-*tert*-ブチルフェニル)オクチルホスファイト、ビス(ノニルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、トリブチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリメチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、ジフェニルモノオルソキセニルホスフェート、ジブチルホスフェート、ジオクチルホスフェート、ジイソプロピルホスフェート、4, 4'-ビフェニレンジホスフィン酸テトラキス(2, 4-ジ-*tert*-ブチルフェニル)、ベンゼンホスホン酸ジメチル、ベンゼンホスホン酸ジエチ

ル、ベンゼンホスホン酸ジプロピル等が挙げられる。なかでも、トリスノニルフェニルホスファイト、トリメチルホスフェート、トリス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、およびベンゼンホスホン酸ジメチルが好ましく使用される。

これらの熱安定剤は、単独でもしくは2種以上混合して用いてもよい。かかる熱安定剤の配合量は、ポリエステル重合体(第一成分)とポリカーボネート(第二成分)との総量を100重量部とした場合、0.0001~1重量部が好ましく、0.0005~0.5重量部がより好ましく、0.001~0.2重量部が更に好ましい。

また、本発明の樹脂組成物には、酸化防止の目的で通常知られた酸化防止剤を配合することもできる。かかる酸化防止剤としては、例えばペンタエリスリトールテトラキス(3-メルカプトプロピオネート)、ペンタエリスリトールテトラキス(3-ラウリルチオプロピオネート)、グリセロール-3-ステアリルチオプロピオネート、トリエチレングリコール-ビス[3-(3-tert-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、1, 6-ヘキサンジオール-ビス[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、ペンタエリスリトール-テトラキス[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、オクタデシル-3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、N, N-ヘキサメチレンビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナマイド)、3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ベンジルホスホネート-ジエチルエステル、トリス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、4, 4'-ビフェニレンジホスフィン酸テトラキス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)、3, 9-ビス{1, 1-ジメチル-2-[β -(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオニルオキシ]エチル}-2, 4, 8, 10-テトラオキサスピロ(5, 5)ウンデカン等が挙げられる。

これら酸化防止剤の配合量は、ポリエステル（第一成分）とポリカーボネート（第二成分）との総量を100重量部とした場合、0.0001～0.5重量部が好ましい。

また、本発明の樹脂組成物には溶融成形時の金型からの離型性をより向上させるために、本発明の目的を損なわない範囲で離型剤を配合することも可能である。かかる離型剤としては、一価または多価アルコールの高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸、パラフィンワックス、蜜蝋、オレフィン系ワックス、カルボキシ基および／またはカルボン酸無水物基を含有するオレフィン系ワックス、シリコンオイル、オルガノポリシロキサン等が挙げられる。かかる離型剤の配合量は、ポリエステル（第一成分）とポリカーボネート（第二成分）との総量を100重量部とした場合、0.01～5重量部が好ましい。

高級脂肪酸エステルとしては、炭素原子数1～20の一価または多価アルコールと炭素原子数10～30の飽和脂肪酸との部分エステルまたは全エステルであるのが好ましい。かかる一価または多価アルコールと飽和脂肪酸との部分エステルまたは全エステルとしては、ステアリン酸モノグリセリド、ステアリン酸ジグリセリド、ステアリン酸トリグリセリド、ステアリン酸モノソルビテート、ステアリン酸ステアリル、ベヘニン酸モノグリセリド、ベヘニン酸ベヘニル、ペンタエリスリトールモノステアレート、ペンタエリスリトールテトラステアレート、ペンタエリスリトールテトラペラルゴネート、プロピレングリコールモノステアレート、ステアリルステアレート、パルミチルパルミテート、ブチルステアレート、メチルラウレート、イソプロピルパルミテート、ビフェニルビフェネート、ソルビタンモノステアレート、2-エチルヘキシルステアレート等が挙げられる。

なかでも、ステアリン酸モノグリセリド、ステアリン酸トリグリセリド、ペンタエリスリトールテトラステアレート、ベヘニン酸ベヘニルが好ましく用いられる。

本願発明の高級脂肪酸としては、炭素原子数10～30の飽和脂肪酸が好ましい。かかる脂肪酸としては、ミリスチン酸、ラウリン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘニン酸、などが挙げられる。

これらの離型剤は、単独でもしくは2種以上混合して用いてもよい。ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸亜鉛といった、金属石けんは、離型性は改善されるが、にがりが大きく、本発明の樹脂組成物には不適である。

本願発明の熱可塑性樹脂組成物には、本願発明の目的を損なわない範囲で、光安定剤を配合することができる。

かかる光安定剤としては、例えば2-(2'-ヒドロキシ-5'-tert-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3-tert-ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(5-メチル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3,5-ビス(α , α -ジメチルベンジル)フェニル]-2H-ベンゾトリアゾール、2,2'-メチレンビス(4-キミル-6-ベンゾトリアゾールフェニル)、2,2'-p-フェニレンビス(1,3-ベンゾオキサジンを4-オン)等が挙げられる。かかる光安定剤の配合量は、ポリエステル重合体(第二成分)とポリカーボネート(第二成分)との総量を100重量部とした場合、0.01~2重量部が好ましい。

これらの光安定剤は、単独でもしくは2種以上混合して用いてもよい。

本発明の樹脂組成物には、レンズに成形した場合、ポリエステル重合体やポリカーボネートや紫外線吸収剤に基づくレンズの黄色味を打ち消すためにブルーイング剤を配合することができる。ブルーイング剤としては、ポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂に使用されるものであれば、特に支障なく使用することができる。

一般的にはアンスラキノン系染料が入手容易であり好ましい。具体的なブルーイング剤としては、例えば一般名Solvent Violet 13 [CA.No (カラーインデックスNo) 60725]、一般名Solvent Violet 31 [CA.No 68210]、一般名Solvent Violet 33 [CA.No 60725]、一般名Solvent Blue 94 [CA.No 61500]、一般名Solvent Violet 36 [CA.No 68210]、一般名Solvent Blue 97および一般名Solvent Blue 45 [CA.No 61110]が代表例として挙げられる。

これらブルーイング剤は通常ポリエステル重合体（第二成分）とポリカーボネート（第二成分）との総量を100重量部とした場合、 $0.1 \times 10^{-4} \sim 2 \times 10^{-4}$ 重量部の割合で配合される。

本発明のポリエステル重合体（第一成分）とポリカーボネート（第二成分）のブレンド方法としては、任意の方法が採用される。例えばタンブラー、V型ブレンダー、スーパーミキサー、ナウターミキサー、バンバリーミキサー、混練ロール、押出機等で混合する方法、あるいは上記2成分を例えば塩化メチレンなどの共通の良溶媒に溶解させた状態で混合する溶液ブレンド方法などがあるが、これは特に限定されるものではなく、通常用いられるポリマーブレンド方法ならどのような方法を用いてもよい。

こうして得られる樹脂組成物は、そのまま、または溶融押出機で一旦ペレット状にしてから、射出成形法、押出成形法、圧縮成形法等の通常知られている方法で成形物にすることができる。

本発明の樹脂組成物は、示差走査熱量測定（DSC）を行ったとき、好ましくは単一のガラス転移温度を与える。一般的には、ポリエステル重合体（第一成分）と芳香族ポリカーボネート（第二成分）に対応する二つのピーク、及び、それ以外のピークやショルダーを与える場合があるが、その多くは、透明性が悪く、熱的に不安定で成形性も悪く、良好な光学材料とはなり難い。

本発明の熱可塑性樹脂組成物の混和性を高めて安定した離型性や各物性を得るためには、溶融押出において単軸押出機、二軸押出機を使用するのが好ましい。

単軸押出機、二軸押出機を用いる方法は、溶剤等を用いることがなく、環境への負荷が小さく、生産性の点からも好適に用いることができる。押出機の溶融混練温度は200から350℃好ましくは230℃から300℃である。200℃より低い温度であると、樹脂の溶融粘度が高く、押出機への負荷が大きくなり、生産性が低下する。350℃より高いと、樹脂の劣化が起こりやすくなり、樹脂の色が黄変したり、分子量が低下するため強度が劣化したりする。また、必要に応じて、熱安定剤、酸化防止剤、離型剤、光安定剤等を同時に混練してもよい。

押出機を使用する場合、押出時に樹脂の焼け、異物の混入を防止するため、フィルターを設置することが望ましい。フィルターの異物除去の大きさは、求められる光学的な精度依存するが、 $100\mu\text{m}$ 以下の異物カット能があるフィルターが好ましい。特に異物の混入を嫌う場合は、 $40\mu\text{m}$ 以下、さらには $10\mu\text{m}$ 以下が好ましい。

押出機から吐出された樹脂は、押出後の異物混入を防止するために、クリーンルーム中で実施することが望ましい。

また、押出された樹脂を冷却しペレット化する際は、空冷、水冷等の冷却方法を使用するのが好ましい。空冷の際に使用する空気はヘパフィルター等で空気中の異物を事前に取り除いた空気を使用し、空気中の異物の再付着を防ぐのが望ましい。水冷を使用する際は、イオン交換樹脂等で金属分を取り除き、さらにフィルターにて、水中の異物を取り除いた水を使用することが望ましい。フィルターの大きさは種々あるが、 $10\sim 45\mu\text{m}$ のフィルターの使用が好ましい。

ポリエステル重合体の重合度は、固有粘度（フェノール60重量%、1, 1, 2, 2-テトラクロロエタン40重量%の混合溶液中、 20°C で測定）にして0.3～0.8の範囲内のポリエステル重合体（第一成分）が好ましい。この固有粘度が極端に低い物はレンズ等に成形した時の機械的強度が弱い。また、固有粘度が大きくなると、成形する際の流動性が低下し、サイクル特性を低下させ、成形品の複屈折率が大きくなり易い傾向がある。従って、ポリエステル重合体（第一成分）としては重合度が固有粘度にして0.3～0.8の範囲内のものを用い、さらに好ましくは0.35～0.7の範囲内のものを用いる。

ポリカーボネートの重合度は固有粘度にして0.2～0.7の範囲内の芳香族ポリカーボネートが好ましい。この固有粘度が極端に低い物はレンズに成形した時の機械的強度が不十分である。また、固有粘度が大きくなると、成形する際の流動性を低下させ、分子配向しやすくなり、射出成形後、複屈折が大きくなる傾向がある。従って、芳香族ポリカーボネートとしては、重合度が固有粘度にして0.2～0.7の範囲内のものを用い、さらに好ましくは0.3～0.55の範囲内のものを用いる。

本発明の樹脂組成物のガラス転移温度は100℃以上、好ましくは120℃以上更に好ましくは130℃以上である。ガラス転移温度が100℃以上だと、高温高湿度下での変形が起こりにくく、レンズの面精度のバラツキが少ないので好ましい。

本発明の光学材料用樹脂組成物は、上記のそれぞれの重合度を持った2成分を均一にブレンドして構成されるが、そのブレンド率はポリエステル重合体（第一成分）と芳香族ポリカーボネート（第二成分）の重量比で、5：95～95：5の範囲内とすることが好ましい。この範囲にあれば、複屈折率の低減効果が顕著に得られるので好ましい。更には、20：80～80：20の範囲内にすることが好ましい。

本発明において、ポリエステル重合体（第一成分）を製造する際に、溶液重合法、界面重合法等を採用する場合には、一般に酸成分の活性種として酸クロライドを用いたり、溶媒としてメチレンクロライド、クロロホルム等が使用するが、ポリマー中には副生成物である塩化物や触媒化合物が残留し、このものは一般的に製品の品質上良くないので、重合工程後に一般に残留異物を除去せねばならない。これらは、シート、フィルム、プレート、繊維等の成形工程での操作性を低下させ、得られる成形体の品質をも低下させる。例えば高温加熱時に熱分解が多量に発生する。

また、光ディスクや光磁気ディスク等の光学材料として本発明の樹脂組成物を使用する際は、反射膜や記録膜等の金属薄膜を基板に蒸着、スパッタリング等の方法で固着するが、基板内に残留塩素分があると、反射膜、記録膜を腐食し、光ディスクや光磁気ディスクの寿命や信頼性を低下させるので、十分な、洗浄、ろ過等の残留する塩素を除去する工程が必要となる。ポリエステル重合体（第一成分）の重合方法としては塩素が混入しないエステル交換法のほうが好ましい。

光ディスク基板の成形には通常射出圧縮成形機がよく適合し、成形条件では、特に金型表面温度と樹脂温度が重要である。ポリエステル重合体（第一成分）とポリカーボネート（第二成分）の配合量、組成及び重合度などにより一概に規定できないが、金型表面温度は50℃以上160℃以下が好ましく、また、この時の樹脂温度は220℃以上330℃以下となるようにするのが良い。金型表面温度が50℃以下の場合には、樹脂

の流動性と転写性が共に悪く、射出成形時に応力歪が残って、複屈折率が大きくなる傾向があり、また、成形サイクルも延びるので経済的でない。金型温度が160℃以上の場合、転写性は良いが、離型時に変形し易い。また、樹脂温度が330℃以上の場合には樹脂の分解が起こり易く、成形品の強度低下、着色の原因となる。

本発明の光学材料用樹脂組成物から光学材料を成形する場合には、原料の投入工程を初め、重合反応、共重合体を冷媒中に押し出してペレット状またはシート状にする工程では塵埃等が入り込まないように留意して行う事が望まれる。このクリーン度は、通常コンパクトディスク用の場合には1000以下であり、更に高度な情報記録用の場合には100以下である。

レンズの成形には、射出成形や射出圧縮成形が一般に用いられている。成形条件では、特に金型表面温度と樹脂温度が重要である。ポリエステル重合体（第一成分）とポリカーボネート（第二成分）の配合量、組成及び重合度などにより一概に規定できないが、金型表面温度は50℃以上160℃以下が好ましく、また、この時の樹脂温度は220℃以上330℃以下となるようにするのが良い。金型表面温度が50℃以下の場合には、樹脂の流動性と転写性が共に悪く、射出成形時に応力歪が残って、複屈折率が大きくなる傾向があり、レンズとしての要求性能が満たされない場合がある。金型温度が160℃以上の場合、離型時に変形し易い。また、樹脂温度が220℃以下の場合、樹脂の流動性が乏しく、成形機に過大な負荷がかかる場合があり好ましくない。樹脂温度が330℃以上の場合には樹脂の分解が起こり易く、成形品の強度低下、着色の原因となる。

レンズの成形の場合、レンズの性能を確保するために、レンズの表面形状を精密にし、さらに複屈折の原因となる残留内部応力をできるだけ小さくする必要がある。成形サイクルとの兼ね合いもあるが、金型温度をなるべく高くし、冷却時間を長めにとって、成形することが多い。金型温度がガラス転移温度 T_g に近づくと、成形収縮率が小さくなり、金型からの離型性が悪くなる場合がある。このような場合には、先に述べた離型剤を配合した樹脂組成物を使用するほうがより好ましい。

以下実施例を用いて説明する。

実施例

(1) 屈折率及びアッペ数

アタゴ社製アッペ屈折計 DR-M2 で、波長 589 nm の干渉フィルターを用い D 線での屈折率 n_d 、波長 639 nm の干渉フィルターを用い C 線での屈折率 n_c 、波長 486 nm の干渉フィルターを用い F 線での屈折率 n_F を測定した。アッペ数 v_d は $(1 - n_d) / (n_c - n_F)$ の式から計算した。測定試料は樹脂を 160～240℃でプレス成形し、厚み 80～150 μ m のフィルムを作製し、得られたフィルムを約 8×20 mm の短冊状に切り出し、測定試験片とした。界面液として 1-ブロモナフタレンを用い 20℃で測定した。

(2) ガラス転移温度 (T_g)

示差走査熱量計 (セイコー電子 DSC-110) に試料約 10 mg を用いて、10℃/min の昇温速度で加熱して測定した。JIS K 7121 (1987) に準拠して、ガラス転移温度 T_g を求めた。

(3) 分子量

カラムとして東ソー製 G-6000、G-4000、G-3000 を直列につなぎ、流速 1 ml/min、溶離液をクロロホルム、検出器として UV 検出器、温度を 40℃にて標準ポリスチレンを用いて作成した検量線を用いて、ポリスチレン換算の重量平均分子量を算出した。

(4) 光線透過率

分光光度計 (島津製作所製 UV-3101PC) を用いて、射出成形機 (住友重機製、ミニマツト 14/7B) を用い金型温度を $T_g - 20^\circ\text{C}$ に設定して成形した 30×30×3 mm 平板成形品の光線透過率を測定した。

(5) MFR

JIS K 7210 に準拠して、オリフィス 2 mm、温度 230℃、荷重 2160 g で

のMFRを測定した

(6) 複屈折

カールツアイス社製偏光顕微鏡にて、セラルモン、ベレック、ブレースケラー式コンペンセーターを装着し、546nmの単色光で測定した。

(6-1) フィルムでの評価

樹脂をを260～300℃で溶融、押し出し成形で、直径30mm、厚さ1mmの円盤状の試験片を作製し、さらにその成形試験片を160～240℃でプレス成形し、厚み80～150μmのフィルムを得た。得られたフィルムを4×40mmの短冊状に切り出し、測定試験片を得た。ガラス転移温度+10℃の温度で測定試験片を20%/secで40%延伸後、急冷し、延伸フィルムを得た。これらのフィルムの複屈折率を測定した。

(6-2) 成形品での評価

射出成形機（住友重機製、ミニマツト14/7B）を用い金型温度を $T_g - 20^\circ\text{C}$ に設定して成形した30×30×3mm平板成形品を得た後、 $T_g - 20^\circ\text{C}$ の温度で3時間アニールした成形品の中心部のレターデーションを測定した。

(7) ポリマーの固有粘度

フェノール60重量%、1, 1, 2, 2-テトラクロロエタン40重量%の混合溶液50mlに共重合体0.15～0.5gを80℃で溶解後、20℃で粘度を測定し決定した。

(8) 耐衝撃特性

JIS K7110に準拠してアイゾット衝撃強度を測定した。

(9) ジエチレングリコール（以下DEGと略する）の定量

試料調製

50mlの1-プロパノールを200mlの共栓フラスコに入れ、2.81gの水酸化カリウム、精秤した2gの樹脂ペレットをいれ、水冷している玉入冷却管を取り付け、攪拌しながら、2時間加熱還溜した。冷却後、水10mlを加え、7gのテレフタル

酸を加え、1時間加熱還溜した。内部標準として、1%のテトラエチレングリコールジメチルエーテルの1-プロパノール溶液を5ml添加し、約5分攪拌。ろ過したサンプルをガスクロマトグラフにより定量し、ジエチレングリコールの含有量を求めた。

(10) プレッシャークッカーテスト

高度加速寿命試験装置（タバイエスペック社製、TPC-212M）にて、温度105℃、湿度100%、24時間の条件で成形品を試験した。

試験後の成形品の外観を確認し、光線透過率を分光光度計（島津製作所製、UV-3101PC）で測定した。

[実施例1]

1, 4-シクロヘキサンジカルボン酸1molに対して、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン0.8mol、エチレングリコール2.2molを原料とし、これらを反応槽に投入し、攪拌しながら常法に従って、室温から230℃に徐々に加熱してエステル化反応を行った。所定量の水を系外へ抜き出した後、重合触媒である酸化ゲルマニウム0.002molと、着色を防止するため、リン酸トリメチルエステル0.0014molとを投入して、昇温と減圧を徐々に行い、発生するエチレングリコールを抜きながら、加熱槽温度を270℃、真空度を133Pa（1Torr）以下に到達させた。この条件を維持し、粘度の上昇を待ち、所定の攪拌トルクに到達後（約4時間後）反応を終了し、反応物を水中に押し出してペレットを得た。

この樹脂を、200℃でプレスし、厚さ約100μmのフィルムを得た。屈折率は1.607、ガラス転移温度は126℃、DEGの含有量は1.8mol%であった。

このポリエステル樹脂（第一成分）とポリカーボネート（第二成分：帝人化成製、パンライト L1250）とを重量比50対50でクリーンルーム内に設置された二軸押出機（東芝機械製 TEM35B）に投入し、熱安定剤として、ビス（2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイトをポリエステル樹脂とポリカーボネートとの総量を100重量部として0.1重量部添加し混練を行ったのち

、押し出された樹脂を1 μm のフィルターを通した水を張った水槽で冷却し、カッターにより連続的に裁断してペレットを得た。このとき、吐出口金の出口での樹脂温度は280℃であった。

得られた樹脂ペレットを200℃でプレスし、厚さ約100 μm のフィルムを得た。屈折率は1.595、アッベ数29、ガラス転移温度は132℃であった。

得られた樹脂ペレットを射出成形機にて成形した成形品は均一透明であった。結果を表1に示す。

[実施例2～5]

ポリエステル重合体（第一成分）とポリカーボネート（第二成分）の組成比を表1に示すように変えた他は実施例1と同様な操作でペレットを製造し、同様に評価した。結果を表1に示す。いずれも均一透明なものが得られ、成形性も良好であった。

[実施例6]

2, 6-デカリンジカルボン酸ジメチルエステル1molに対して、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン0.55mol、エチレングリコール2.2molを原料とし、触媒として、酢酸カルシウム0.0008mol、酢酸マンガン0.0002molを用い、これらを反応槽に投入し、攪拌しながら常法に従って室温から230℃に徐々に加熱してエステル交換反応を行った。所定量のメタノールを系外へ抜き出した後、重合触媒である酸化ゲルマニウム0.012molと、着色を防止するため、リン酸トリメチルエステル0.0018molとを投入して、昇温と減圧を徐々にいき、発生するエチレングリコールを抜きながら、加熱槽温度を270℃、真空度を133Pa（1Torr）以下に到達させた。この条件を維持し、粘度の上昇を待ち、所定の攪拌トルクに到達後（約2時間後）反応を終了し、反応物を水中に押し出してペレットを得た。

ガラス転移温度は123℃、屈折率1.584、DEGの含有量は2.3mol%であった。

このポリエステル樹脂（第一成分）とポリカーボネート（第二成分：帝人化成製、パ

ンライト L1250) とを重量50対50でクリーンルーム内に設置された二軸押出機(東芝機械製 TEM35B)に投入し、熱安定剤として、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイトをポリエステル樹脂とポリカーボネートとの総量を100重量部として0.1重量部添加し混練を行ったのち、押し出された樹脂を1 μ mのフィルターを通した水を張った水槽で冷却し、カッターにより連続的に裁断してペレットを得た。このとき、吐出口金の出口での樹脂温度は280℃であった。

得られた樹脂ペレットを200℃でプレスし、厚さ約100 μ mのフィルムを得た。屈折率は1.584、アッペ数31、ガラス転移温度は130℃であった。

得られた樹脂ペレットを射出成形機にて成形した成形品は均一透明であった。結果を表1に示す。

[実施例7]

実施例1で得られたポリエステル重合体(第一成分)とポリカーボネート(第二成分: 帝人化成製、パンライト L1250)とを重量比50対50で混合後、熱安定剤として、ビス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイトをポリエステル樹脂とポリカーボネートの総量を100重量部として、0.05重量部、離型剤として、ステアリン酸0.4重量部を樹脂に添加し混合した。クリーンルーム内にある30 μ mのフィルターを設置した二軸押出機(東芝機械製 TEM25B)に混合した樹脂と添加剤を定量で投入し混練を行った後、押し出された樹脂を1 μ mのフィルターを通した水を張った水槽で冷却し、カッターにより連続的に裁断してペレットを得た。このときの吐出口金での樹脂温度は280℃であった。

得られた樹脂ペレットを200℃でプレスし、厚さ約100 μ mのフィルムを得た。屈折率は1.595、アッペ数29、ガラス転移温度は131℃であった。

結果を表1に示す。成形品は均一で透明なものが得られた。金型温度をT_gに近い(T_g-10℃程度)にしても成形性では良好で、離型性も良好であった。

表 1

	第一成分の組成		混練時の組成		ガラス 転移 温度 ℃	MFR g/10min	衝撃 強度	屈折率 nd	アッペ ル 数	光線透過率 3mm %			複屈 折率 $\times 10^{-4}$	レターデーション nm
	酸	ジクロキシ 化合物	第一成分の 重量部	第二成分の 重量部						700nm	500nm	400nm		
実施例1	A	80	50	50	132	4	3.4	1.595	29	89.2	87.2	82.3	46	70
実施例2	A	80	30	70	136	3	3.8	1.591	29	89.5	88.0	84.2	70	30
実施例3	A	80	70	30	128	5	3.2	1.600	28	88.3	86.3	80.1	32	120
実施例4	A	80	10	90	126	2	4.5	1.587	29	89.6	88.9	86.1	89	25
実施例5	A	80	90	10	137	7	3	1.604	28	88.0	85.4	78.1	20	180
実施例6	B	55	50	50	130	4	3	1.584	31	89.3	87.4	82.5	51	75
実施例7	A	80	50	50	131	5	3.4	1.595	29	89.2	97.1	82	46	70
比較例1	—	—	0	100	140	1	7	1.585	30	89.9	89.5	88.0	95	200
比較例2	A	80	100	0	140	12	2.9	1.607	27	88.6	85.3	76.5	3	15
比較例3	A	80	50	50	131	5	3.4	—	—	41.6	16.2	4.3	—	—

ジクロキシ化合物: 9, 9-ビス[4-(ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン

A: 1, 4-シクロヘキサジカルボン酸

B: 2, 6-デカリンジカルボン酸ジメチルエステル

比較例 3

実施例 7 の離型剤をステアリン酸カルシウム 0.4 重量部に変更したほかは実施例 7 と同様にしてペレットを得た。成形品は白濁しており、可視光領域を利用するレンズ材料としては不適であった。

比較例 1 はポリカーネート（第二成分：帝人化成製、パンライト L1250）単独での測定値を示す。比較例 2 は実施例 1 で記載したポリエステル重合体（第一成分）単独での測定値である。

本発明の樹脂組成物は表 1 から明らかなように、ポリカーボネートの耐衝撃性、透明性がよいが、複屈折の大きいという点とポリエステル重合体の流動性が良く、屈折率が高く、複屈折が小さいが耐衝撃性、耐熱性、透明性が不満足という、ポリカーボネートとポリエステルの両者の長所と欠点を補いあった透明性、耐熱性、耐衝撃性を保持したバランスのとれた樹脂組成物であることがわかる。

プレッシャークッカーテストの結果を表 2 に示す。レンズの耐環境試験として、温度 65℃、相対湿度 80%、数 100 時間という条件や、温度 85℃、相対湿度 90%、数 100 時間という条件での試験が実施されているが、より厳しい温度 105℃、相対湿度 100%、24 時間での高温高湿下の安定性の促進テストを実施した。本発明の実施例 1 から 5 及び 7 では、一部は若干白濁し、透過率の低下は見られた。比較例 2 すなわち実施例 1 から 5 及び 7 に使用したポリエステル重合体（第 1 成分）単独の試験結果では、白濁が大きく、ほとんど光線が透過しなかった。この結果から本発明のポリエステル重合体とポリカーボネートをブレンドしてなる樹脂組成物は高温高湿下での耐久性が向上していることがわかる。

表 2

	プレッシャークッカーテスト前				プレッシャークッカーテスト後				
	外観	光線透過率(%) 3mm			光線透過率(%) 3mm			外観	
		700nm	500nm	400nm	700nm	500nm	400nm	変形	白濁
実施例1	○	89.2	87.2	82.3	81.3	76.5	67.3	○	△～○
実施例2	○	89.5	88.0	84.2	87.5	86.0	80.2	○	○
実施例3	○	88.3	86.3	80.1	78.6	70.5	59.3	○	△
実施例4	○	89.6	88.9	86.1	88.5	87.5	86.0	○	○
実施例5	○	88.0	85.4	78.1	50.5	40.3	30.2	○	△
実施例6	○	89.3	87.4	82.5	—	—	—	○	
実施例7	○	89.2	97.1	82.0	82.3	77.5	68.3	○	△～○
比較例1	○	89.9	89.5	88.0	89.0	88.0	87.0	○	○
比較例2	○	88.6	85.3	76.5	30.6	19.4	10.2	○	×

試験条件: 温度105℃、湿度100%、24時間

変形: ○=変形無し

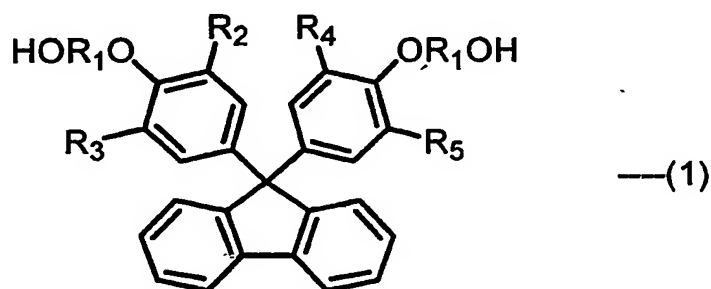
白濁: ○=白濁無し、△=若干白濁、×=白濁

産業上の利用可能性

本発明の樹脂組成物は、カメラレンズ、ファインダーレンズ、CCDやCMOS用レンズなどのレンズ用途、液晶やプラズマディスプレイなどに利用されるフィルム、シート、光学材料への使用に適している。

請 求 の 範 囲

1. ジカルボン酸化合物とジヒドロキシ化合物からなるポリエステル重合体であって、ジカルボン酸化合物が脂環族ジカルボン酸および／またはそのエステル形成性誘導体を含み、ジヒドロキシ化合物が一般式（1）で示される化合物を含むポリエステル重合体とポリカーボネートとをブレンドしてなる樹脂組成物。



(R_1 は炭素数2から4のアルキレン基、 R_2 、 R_3 、 R_4 、及び R_5 は水素または炭素数1から4のアルキル基、アリール基、アラルキル基であり同じであっても異なってもよい)

2. ジカルボン酸化合物とジヒドロキシ化合物からなるポリエステル重合体であって、ジカルボン酸化合物が脂環族ジカルボン酸および／またはそのエステル形成性誘導体を含み、ジヒドロキシ化合物が一般式（1）で示される化合物を含むポリエステル重合体とポリカーボネートとを重量比5：95から95：5の範囲でブレンドしてなる請求の範囲1記載の樹脂組成物。

3. 脂環族ジカルボン酸が、シクロヘキサンジカルボン酸、デカリンジカルボン酸、ノルボルナンジカルボン酸、アダマンタンジカルボン酸、またはトリシクロデセンジカルボン酸から選ばれる少なくとも1種の化合物であることを特徴とする請求の範囲1または2いずれかに記載の樹脂組成物。

4. 一般式（1）で示されるジヒドロキシ化合物が、9，9-ビス[4-（2-ヒドロキシエトキシ）フェニル]フルオレンおよび／または9，9-ビス[4-（2-ヒドロキシエトキシ）-3-メチルフェニル]フルオレンであることを特徴とする請求項1か

ら 3 のいずれかに記載の樹脂組成物。

5. ポリカーボネートが芳香族ポリカーボネートであること特徴とする請求の範囲 1 から 3 のいずれかに記載の樹脂組成物。

6. 請求の範囲 1 から 5 いずれかに記載の樹脂組成物を加熱下で熔融混練することにより得ることを特徴とする樹脂組成物。

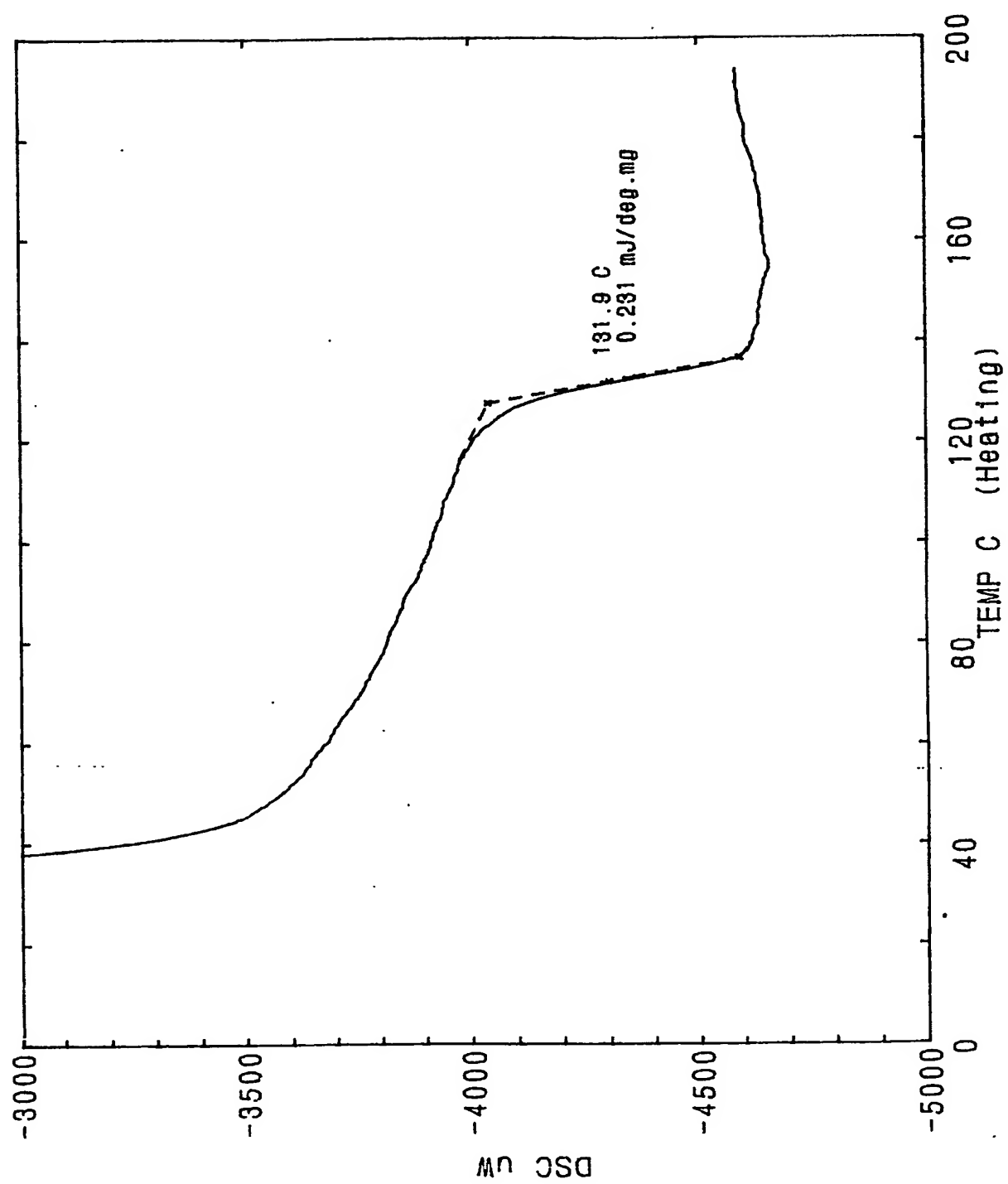
7. 請求の範囲 1 から 5 いずれかに記載の樹脂組成物を加熱下で熔融混練する際に、熱安定剤を同時に添加し熔融混練することにより得ることを特徴とする樹脂組成物。

8. 請求の範囲 1 から 5 いずれかに記載の樹脂組成物を加熱下で熔融混練する際に、熱安定剤と離型剤を同時に添加し熔融混練することにより得ることを特徴とする樹脂組成物。

9. 請求の範囲 1 から 8 いずれかに記載の樹脂組成物を成形してなる光学材料。

1 / 1

第 1 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014320

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08G63/672, C08L67/02, C08L69/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08G63/00-63/91, C08L67/00-67/02, C08L69/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-2004	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6066711 A (KANEBO LTD.), 23 May, 2000 (23.05.00), Claims 1, 3, 9, 12 & JP 9-302077 A Claims 1, 3, 5, 6	1-9
A	JP 8-41303 A (Kanebo, Ltd.), 13 February, 1996 (13.02.96), Claim 1 (Family: none)	1-9

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
15 October, 2004 (15.10.04)

Date of mailing of the international search report
02 November, 2004 (02.11.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ C08G 63/672、C08L 67/02、C08L 69/00		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl ⁷ C08G 63/00- 63/91、C08L 67/00- 67/02、C08L 69/00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-2004年 日本国公開実用新案公報 1971-2004年 日本国登録実用新案公報 1994-2004年 日本国実用新案登録公報 1996-2004年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAS ONLINE		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	US 6066711 A (KANEBO LTD.) 2000.05.23、請求項1、3、9、12 & J P 9-302077 A、【請求項1】、【請求項3】、 【請求項5】、【請求項6】	1-9
A	J P 8-41303 A (鐘紡株式会社) 1996.02.13、【請求項1】 (ファミリーなし)	1-9
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列举されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に関する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 15.10.2004	国際調査報告の発送日 02.11.2004	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 森川 聡	4 J 9268
電話番号 03-3581-1101 内線 3456		